ARTICLE PRINCIPAL

03 DEC. 1966

ETUDE DE L'INFLUENCE DE LA STRUCTURE HYPERFINE DU NIVEAU EXCITE SUR L'OBTENTION D'UNE ORIENTATION NUCLEAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE

recouvrant en partie la thèse de Doctorat ès Sciences Physiques
que Monsieur Jean - Claude LEHMANN
soutiendra à la Faculté des Sciences de Paris en 1966

Thèse enregistrée au C.N.R.S. sous le N° A O 1069

UNIV.
LEIDEN
BIBL.

ÉTUDE DE L'INFLUENCE DE LA STRUCTURE HYPERFINE DU NIVEAU EXCITÉ SUR L'OBTENTION D'UNE ORIENTATION NUCLÉAIRE PAR POMPAGE OPTIQUE.

Par JEAN-CLAUDE LEHMANN,
Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure, Paris.

Résumé. — L'étude de l'orientation nucléaire par pompage optique est faite dans des conditions plus générales que celles envisagées jusqu'à présent. On s'intéresse, en particulier, à l'influence de la grandeur de la structure hyperfine du niveau excité par rapport à sa largeur naturelle, ainsi qu'aux effets du découplage partiel de cette structure hyperfine par le champ magnétique. Le formalisme de la matrice densité permet d'exposer les résultats obtenus sous une forme très générale. Parmi les effets nouveaux prévus, on peut citer la dissymétrie des pompages optiques en σ^- et en σ^+ pour des valeurs intermédiaires du découplage hyperfin. De ce fait résulte la possibilité d'obtenir une orientation nucléaire par pompage optique en lumière naturelle. Par ailleurs, lorsque la structure hyperfine du niveau excité est de l'ordre de grandeur de sa largeur naturelle, l'efficacité du cycle de pompage optique est diminuée. Dans cette même hypothèse, on a pu prévoir l'existence de nouveaux processus produisant le déplacement de la raie de résonance magnétique de l'état fondamental sous l'influence de l'irradiation lumineuse, et apportant des caractères nouveaux à la modulation de la lumière de fluorescence lors d'une expérience de résonance magnétique. Les résultats de cette étude sont explicités dans le cas particulier d'un spin nucléaire $I = 1/2$. Ce cas correspond aux isotopes ^{111}Cd et ^{113}Cd sur lesquels la présente théorie est en cours de vérification expérimentale.

Abstract. — The production of nuclear orientation by optical pumping is studied under more general conditions than ha been done previously. The influence of the magnitude of the hyperfine structure of the excited state as compared to its natural width is taken into account, and also the effect of the decoupling of I and J by the magnetic field. Density matrix formalism is used throughout. Among some new effects which are predicted, one can stress the asymmetry of optical pumping in σ^+ and in σ^- for intermediate field values : it is thus possible to obtain nuclear *orientation* (of spin 1/2) by optical pumping with *unpolarized* light. On the other hand, when the hyperfine structure of the excited state is of the same order of magnitude as its natural width, the efficiency of the optical pumping process decreases. Under the last conditions one can also predict new processes producing a small shift of the magnetic (ground state) resonance line, and giving new characteristics to the modulation of the fluorescence. A detailed calculation of the above effects is performed in the case of a nuclear spin 1/2 corresponding to ^{111}Cd and ^{113}Cd.

Introduction. — La méthode de pompage optique, appliquée à des atomes *diamagnétiques*, permet d'obtenir des orientations *nucléaires* appréciables des isotopes impairs. Ce cycle de pompage a fait l'objet de nombreux travaux théoriques et expérimentaux [1, 2]. Il a été utilisé avec succès pour les isotopes ^{195}Hg, ^{197}Hg, ^{199}Hg, ^{201}Hg [1], et plus récemment pour ^{111}Cd et ^{113}Cd [4].

La production, par pompage optique, d'une orientation nucléaire dans l'état fondamental $^1S_0$, apparaît très naturelle, si l'on fait brutalement usage des probabilités de transition, en *champ faible*, entre un sous-niveau Zeeman $|\mu_I>$ de l'état fondamental et un sous-niveau $|F, m_F>$ du niveau hyperfin F (dû à l'interaction aIJ) de l'état excité.

Si l'on fait le même calcul en *champ fort*, lorsque le découplage IJ dans l'état excité est total, et que l'on néglige complètement aIJ devant les énergies magnétiques, on trouve qu'il ne se produit plus aucune orientation nucléaire. Ceci résulte de la règle de sélection $\Delta m_I = 0$ à l'absorption et à l'émission.

Le cas du champ faible apparaît alors moins évident, puisqu'il n'est fait usage que de transitions *dipolaires électriques* n'affectant pas le spin *nucléaire*. Il est instructif, à cet égard, de raisonner en représentation $m_I\, m_J$. La figure 1 est relative au cas où $I = 1/2$ (^{199}Hg, ^{111}Cd, ^{113}Cd). Étudions le pompage en σ^+ à partir du niveau $\mu_I = -1/2$.

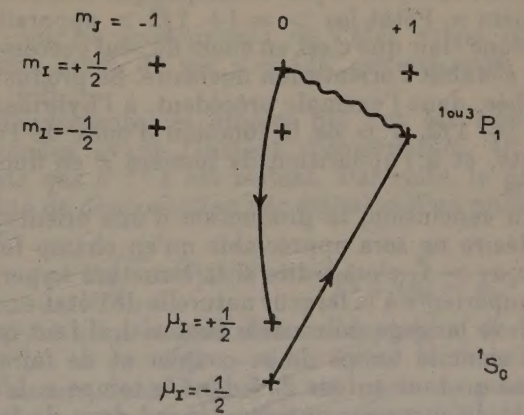

FIG. 1.

Dans l'hypothèse où la largeur Δ de la raie excitatrice est grande devant la structure hyperfine de l'état excité (« broad line excitation »), on peut montrer [3] que la résonance optique comporte trois phases successives indépendantes.

1) Absorption d'un photon. La « durée » de ce processus est de l'ordre de $1/\Delta$. Pour un photon dipolaire électrique σ^+, les règles de sélection sont $\Delta m_J = +1$, $\Delta m_I = m_I - \mu_I = 0$. A l'issue de cette première phase, l'atome, initialement dans l'état $|\mu_I> = |-1/2>$, se trouve donc porté dans l'état excité $|m_I\, m_J> = |-1/2, +1>$.

2) Évolution propre de l'atome excité pendant la durée de vie τ de cet état, sous l'influence du Hamiltonien Zeeman et du couplage hyperfin aIJ : La partie non diagonale de ce dernier terme mélange les fonctions d'onde des états de même valeur de $m = m_I + m_J$, soit, dans l'exemple précédent, les états $|-1/2, +1>$ et $|+1/2, 0>$. (Par contre, l'état $|+1/2, +1>$ atteint par excitation σ^+ à partir de $|\mu_I> = |+1/2>$ reste pur.) On voit donc qu'au cours de cette phase, il existe une probabilité finie de retournement du spin nucléaire, liée à l'apparition de l'état $|+1/2, 0>$.

Cette probabilité sera cependant *très faible* dans deux cas :

a) Si le couplage hyperfin dont la durée d'établissement est de l'ordre de $1/a$ n'a pas le temps de se produire au cours de la durée de vie τ, c'est-à-dire lorsque $a\tau \ll 1$. (La condition précédente signifie encore que la structure hyperfine est plus faible que la largeur naturelle du niveau.)

b) En champ fort. Dans ce cas, le champ découple I et J, et l'évolution propre de l'état excité s'effectue essentiellement sous l'effet du Hamiltonien Zeeman qui ne mélange pas les états de même m.

3) Émission spontanée à partir des états $|-1/2, +1>$ et $|+1/2, 0>$ avec les règles de sélection habituelles, et en particulier

$$\Delta m_I = m'_I - \mu'_I = 0.$$

C'est au cours de ce processus que, par émission de lumière π, l'état $|\mu_I> = |+1/2>$ apparaît. Il est donc clair que c'est au cours du seul processus 2 que s'établit l'orientation nucléaire. Sa production est liée, dans l'exemple précédent, à l'hybridation par $|+1/2, 0>$ de la fonction d'onde de l'état excité, et à l'apparition de lumière π en fluorescence.

En conclusion, la production d'une orientation nucléaire ne sera appréciable qu'en champ faible et si $a\tau > 1$, c'est-à-dire si la structure hyperfine est supérieure à la largeur naturelle de l'état excité. Dans le langage du modèle vectoriel, il faut que I et J aient le temps de se coupler et de faire au moins un tour autour de F dans le temps τ. L'efficacité du pompage optique dépend donc de façon cruciale de la grandeur relative de a, $\Gamma = 1/\tau$ et $g_J \mu_B H$ (g_J facteur de Landé de l'état excité, μ_B magnéton de Bohr, H champ magnétique dans lequel est plongé l'atome).

Les nombreux travaux théoriques et expérimentaux qui ont été faits sur l'orientation nucléaire des isotopes impairs du mercure correspondent au cas où la structure hyperfine de l'état excité est grande devant sa largeur naturelle, et devant les écarts Zeeman.

Le but du présent travail est de traiter *le cas où ces deux restrictions sont levées.*

Ce cas correspond à des situations qui sont effectivement réalisées dans la pratique et dont nous avons entrepris l'étude :

Pompage optique de ^{67}Zn par la raie de résonance $4\,^1S_0 - 4\,^1P_1$ à 2 138 Å et de ^{111}Cd et ^{113}Cd par la raie de résonance $5\,^1S_0 - 5\,^1P_1$ à 2 288 Å.

Le niveau $4\,^1P_1$ de ^{67}Zn a une structure hyperfine qui est certainement très faible et sans doute beaucoup plus petite que sa largeur naturelle ($\tau \sim 10^{-9}$ s). Ceci est très probablement à l'origine de l'échec de nos tentative de production d'orientation nucléaire de cet isotope par 2 138 Å.

Par contre le niveau $5\,^1P_1$ de ^{111}Cd et ^{113}Cd a une structure hyperfine de 279 Mc/s et une durée de vie de $1{,}6 \times 10^{-9}$ s [5]. Dans ce cas, a et τ sont du même ordre de grandeur ; par ailleurs, le découplage IJ est très appréciable dès 100 Gauss, si bien qu'il est facile de faire varier le paramètre $a/g_J \mu_B H$.

Nous avons observé l'orientation nucléaire de ^{111}Cd et ^{113}Cd. Les signaux correspondants se prêtent, par suite, très bien à la vérification des résultats que nous présentons ci-après. Le plan de cette étude est le suivant :

I. Calcul de l'efficacité du pompage optique dans le cas où $I = 1/2$, utilisant le schéma de production de l'orientation nucléaire présenté ci-dessus.

A l'issue de ce paragraphe, nous rappelons quelques résultats bien connus qui nous seront nécessaires dans la suite : structure des niveaux d'énergie et valeur des éléments de matrice du dipôle électrique entre les sous-niveaux $|\mu_I>$ de l'état fondamental et $|F, m_F>$ de l'état excité.

II. Nous étudions ensuite le cas d'un spin nucléaire I quelconque en utilisant le formalisme de la matrice densité.

Nous avons repris pas à pas les diverses étapes du calcul de Cohen-Tannoudji [3] mais avec des hypothèses de départ et des approximations différentes :

a) $a\tau$ quelconque et champ H quelconque.

b) *Excitation par une raie large par rapport à la structure hyperfine.* (Ceci correspond au cas où $a\tau \sim 1$ rencontré dans nos expériences sur le cadmium.) Cette hypothèse a pour conséquence de faire apparaître, en plus des termes classiques de

Cohen-Tannoudji, des termes liés à la « cohérence hyperfine », éléments non diagonaux de la matrice densité entre sous-niveaux *hyperfins* de l'état excité Ces termes modifient les conditions d'évolution des populations, et les conditions de circulation de cohérence.

Nous décrivons l'influence de ces termes sur les grandeurs observées expérimentalement : position et largeur de la raie de résonance magnétique dans l'état fondamental, modulation de la lumière de fluorescence à la fréquence de cette résonance, etc...

III. Nous explicitons, dans le cas où $I = 1/2$, les résultats précédents.

I. Étude simplifiée dans le cas où $I = 1/2$. — Nous reprenons les différentes phases du cycle de pompage analysé dans l'introduction. Les hypothèses de calcul sont les suivantes :

L'état fondamental $^1S_0$ est diamagnétique.

Le spin nucléaire est $I = 1/2$.

La largeur Δ de la raie excitatrice est grande devant la structure de la raie : $\Delta \gg a$, $\omega_{e,1/2}$, $\omega_{e,3/2}$, ω_f.

a est la constante de structure hyperfine de l'état excité.

$\omega_{e,1/2}$ et $\omega_{e,3/2}$ sont les structures Zeeman des sous-niveaux hyperfins $F = 1/2$ et $F = 3/2$.

ω_f est la structure Zeeman du niveau fondamental ($\omega_f \ll \omega_e$).

Les inégalités précédentes signifient que l'excitation est du type « broad line » pour l'ensemble de la structure hyperfine et pour toutes les valeurs du champ étudiées. On peut montrer dans ce cas [3] que le processus d'absorption (de lumière σ^+) à partir du sous-niveau $|\mu_I> = |-1/2>$ peut être considéré comme instantané. On aboutit ainsi au temps zéro dans l'état $|m_I\, m_J> = |-1/2, +1>$. Cet état évolue sous l'effet du Hamiltonien.

$$\mathcal{H}_e = aIJ + \mu_B H(g_J J + g_I I). \qquad (1)$$

(Nous supposons que l'état excité n'est pas perturbé par d'autres niveaux de structure fine.) Nous négligerons le terme en $g_I I$ dû au magnétisme nucléaire devant celui en $g_J J$ dû au magnétisme électronique. La présence de ce terme n'entraîne d'ailleurs aucune complication mathématique particulière et son influence est négligeable.

Nous avons alors

$$\mathcal{H}_e = aI_z J_z + g_J \mu_B H J_z + \frac{a}{2}(I_+ J_- + I_- J_+). \qquad (2)$$

Il suffit de résoudre l'équation de Schrödinger ($\hbar = 1$) :

$$i\frac{d}{dt}|\psi(t)> = \mathcal{H}_e|\psi(t)>$$

avec la condition initiale

$$|\psi(0)> = |-1/2, +1>.$$

Il est clair que le terme $(I_+ J_- + I_- J_+)$ du Hamiltonien (2) (et lui seul) est à l'origine d'un mélange des états ayant même valeur de $m = m_I + m_J$. Dans le cas présent, il n'y a que deux tels états $|-1/2, +1>$ et $|+1/2, 0>$. En posant

$$\psi(t) = \alpha(t)\,|-1/2, +1> + \beta(t)|+1/2, 0>,$$

avec la condition de normalisation

$$|\alpha|^2 + |\beta|^2 = 1,$$

on trouve

$$\begin{cases} i\dfrac{d\alpha}{dt} = \left(-\dfrac{a}{2} + g_J \mu_B H\right)\alpha + \dfrac{a}{\sqrt{2}}\beta \\ i\dfrac{d\beta}{dt} = \dfrac{a}{\sqrt{2}}\alpha. \end{cases}$$

On en déduit

$$\begin{cases} \alpha(t) = \dfrac{\omega_2}{\omega_2 - \omega_1} e^{-i\omega_1 t} - \dfrac{\omega_1}{\omega_2 - \omega_1} e^{-i\omega_2 t} \\ \beta(t) = \dfrac{a/\sqrt{2}}{\omega_2 - \omega_1}[e^{-i\omega_1 t} - e^{-i\omega_2 t}] \end{cases}$$

$$\begin{cases} \omega_1 = \dfrac{3a}{4}\left(x - \dfrac{1}{3} - \sqrt{1 - \dfrac{2x}{3} + x^2}\right) \\ \omega_2 = \dfrac{3a}{4}\left(x - \dfrac{1}{3} + \sqrt{1 - \dfrac{2x}{3} + x^2}\right) \end{cases} \qquad (3)$$

ω_1 et ω_2 sont les énergies des niveaux

$$|F, m> = |1/2, +1/2> \text{ et } |3/2, +1/2>$$

dans le champ H.

Le paramètre x caractérise le degré de découplage IJ : $x = 2g_J \mu_B H/3a$.

Ainsi, la probabilité de trouver, à l'instant t, dans l'état

$$|m_I\, m_J> = |+1/2, 0>,$$

un atome excité à l'instant zéro dans l'état $|-1/2, +1>$ vaut :

$$|\beta|^2 = \frac{a^2}{(\omega_2 - \omega_1)^2}[1 - \cos(\omega_2 - \omega_1)\,t].$$

Tous les sous-niveaux de l'état excité ont la même durée de vie $\tau = 1/\Gamma$ qui est aussi celle de $|\psi(t)>$.

Envisageons les atomes qui ont été excités t secondes avant l'instant d'observation. Il n'en reste que $e^{-\Gamma t}$ à cet instant. Par suite, la probabilité de désexcitation par émission d'un photon π est

$$p = \Gamma \int_0^\infty e^{-\Gamma t}\,|\beta(t)|^2\,dt = \frac{a^2}{\Gamma^2 + (\omega_2 - \omega_1)^2}.$$

C'est aussi la probabilité d'apparition de l'état $|\mu_I> = |+1/2>$ dans l'état fondamental : p mesure donc l'efficacité du cycle de pompage optique pour produire l'orientation nucléaire dans

l'état fondamental. En tenant compte des valeurs de ω_2 et ω_1 et en posant

$$\delta = \frac{3a}{2}\left(x - \frac{1}{3}\right) = g_J \mu_B H - \frac{a}{2},$$

on trouve

$$p = \frac{a^2}{\Gamma^2 + 2a^2 + \delta^2}. \qquad (4)$$

Le paramètre δ est représenté sur la figure 2 : C'est la distance, à la valeur considéré de H, des asymptotes des niveaux d'énergie $m = +1/2$.

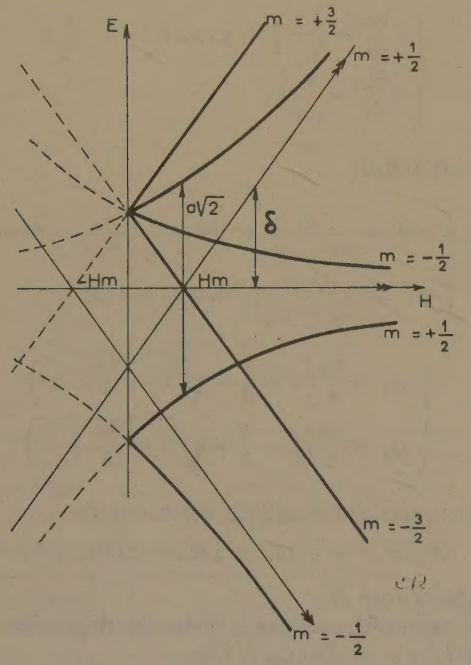

FIG. 2.

Il importe de faire plusieurs remarques au sujet de la formule (4).

a) Elle permet, dans l'exemple actuel, de calculer immédiatement le *taux de polarisation* de la lumière de résonance optique, à la suite d'une excitation « broad line » σ^+. On trouve qu'à la réémission

$$\rho = \frac{I_{\sigma+} - I_\pi}{I_{\sigma+} + I_\pi} = 1 - 2p\,\sigma_{-1/2-1/2}$$

$\sigma_{-1/2-1/2}$ est la population du sous-niveau fondamental $\mu_I > = |- 1/2 >$. Elle est déterminée par le pompage optique et la relaxation. On voit que si $a \ll \Gamma$, *p est nul* : une absorption σ^+ est suivie d'une émission σ^+ pure, comme dans le cas des isotopes pairs : ainsi, *tous les isotopes, pairs et impairs, ont le même taux de polarisation de la résonance optique si* $a \ll \Gamma$. Il en est de même en champ fort. Ces faits sont susceptibles de vérifications expérimentales.

b) p reflète le mélange des états de même m par la partie non diagonale $(I_+ J_- + I_- J_+)$ du Hamiltonien (2). p est maximum lorsque $\delta = 0$, c'est-à-dire (*fig.* 2) pour la valeur $H = a/2g_J \mu_B$: le pompage en σ^+ aura donc *un maximum d'efficacité pour cette valeur non nulle du champ.*

On peut faire le calcul p' de p pour le pompage en σ^-. On arrive à une expression identique à (4), dans laquelle l'expression δ' de δ est

$$\delta' = -g_J \mu_B H - \frac{a}{2}.$$

Le pompage en σ^- *a donc une efficacité toujours décroissante* en fonction du champ. Elle n'est égale à celle du pompage en σ^+ qu'en champ nul.

Le pompage en σ^+ est donc, dans l'exemple actuel, toujours plus efficace que le pompage en σ^-. Une conséquence remarquable de ce fait est que l'on peut produire l'orientation du spin nucléaire 1/2 par pompage en *lumière naturelle* se propageant dans la direction du champ. L'efficacité du processus est maximum pour une valeur de H de l'ordre de $a/g_J \mu_B$. Nous reviendrons plus loin sur ces phénomènes qui ont été observés et qui sont représentés sur la figure 4. Nous reviendrons de même sur leur relation avec les phénomènes d'anticroisement (anticrossing, [6]).

c) p tend vers zéro si $\delta \gg a$, Γ, c'est-à-dire en champ fort (*fig.* 2), comme nous l'indiquions dans l'introduction. Cette propriété ne fait que traduire la règle de sélection optique $\Delta m_I = 0$: elle tient au découplage de I et de J par le champ. L'évolution propre dans l'état excité s'effectue alors sous l'effet du Hamiltonien Zeeman qui ne couple pas les états de même m.

d) p tend vers zéro si $a \ll \Gamma$, c'est-à-dire quand la structure hyperfine est petite devant la largeur naturelle des niveaux. Pour reprendre l'image donnée plus haut, le couplage aIJ n'a pas le « temps » de s'établir au cours de la durée de vie de l'état excité.

Nous aurons besoin, dans la suite, des équations donnant la position des niveaux d'énergie (représentés sur la figure 2). Certaines ont déjà été données (formule (3)). De façon générale, comme $J = 1$ et $I = 1/2$, elles sont données par les formules de Breit-Rabi.

Nous donnons ci-dessous la valeur des éléments de matrice du dipôle électrique correspondant à la polarisation e_{λ_0}, entre le sous-niveau fondamental $|\mu >$ et un sous-niveau excité que nous nommerons $|F, m >$ (bien que F ne reste pas un bon nombre quantique pour les valeurs élevées de H) :

$$< \mu | e_{\lambda_0} D | F, m >$$

(D est l'opérateur dipolaire électrique réduit à sa partie angulaire).

Posons

$$N_\pm = \pm x - 1/3 \qquad R_\mp = \left(x^2 \pm \frac{2x}{3} + 1\right)^{1/2}$$

$$(x = 2g_J \mu_B H/3a).$$

TABLEAU 1

$$c = \left\langle +\frac{1}{2} \middle| e_{\sigma+} D \middle| \frac{3}{2}+\frac{3}{2} \right\rangle = 1$$

$$\left\langle +\frac{1}{2} \middle| e_{\sigma-} D \middle| \frac{3}{2}-\frac{1}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(1+\frac{N_-}{R_+}\right)^{1/2}$$

$$\left\langle +\frac{1}{2} \middle| e_{\sigma-} D \middle| \frac{1}{2}-\frac{1}{2} \right\rangle = -\frac{1}{\sqrt{2}}\left(1-\frac{N_-}{R_+}\right)^{1/2}$$

$$b_1 = \left\langle +\frac{1}{2} \middle| e_{\pi} D \middle| \frac{3}{2}+\frac{1}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(1-\frac{N_+}{R_-}\right)^{1/2}$$

$$b_2 = \left\langle +\frac{1}{2} \middle| e_{\pi} D \middle| \frac{1}{2}+\frac{1}{2} \right\rangle = -\frac{1}{\sqrt{2}}\left(1+\frac{N_+}{R_-}\right)^{1/2}$$

$$\left\langle -\frac{1}{2} \middle| e_{\sigma-} D \middle| \frac{3}{2}-\frac{3}{2} \right\rangle = 1$$

$$a_1 = \left\langle -\frac{1}{2} \middle| e_{\sigma+} D \middle| \frac{3}{2}+\frac{1}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(1+\frac{N_+}{R_-}\right)^{1/2}$$

$$a_2 = \left\langle -\frac{1}{2} \middle| e_{\sigma+} D \middle| \frac{1}{2}+\frac{1}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(1-\frac{N_+}{R_-}\right)^{1/2}$$

$$\left\langle -\frac{1}{2} \middle| e_{\pi} D \middle| \frac{3}{2}-\frac{1}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(1-\frac{N_-}{R_+}\right)^{1/2}$$

$$\left\langle -\frac{1}{2} \middle| e_{\pi} D \middle| \frac{1}{2}-\frac{1}{2} \right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(1+\frac{N_-}{R_+}\right)^{1/2}$$

Les lettres a, b, c sont des notations utilisées ultérieurement (paragr. III). i, j et k étant les vecteurs unitaires des trois axes (H étant aligné sur Oz)

$$e_{\sigma\pm} = \mp\frac{i \pm ij}{\sqrt{2}} \qquad e_{\pi} = k.$$

En champ faible ($x = 0$), ces éléments de matrice sont les coefficients de Clebsch-Gordan utilisés par Cohen-Tannoudji [3].

II. Calcul dans le formalisme de la matrice densité. Cas de I quelconque. — Nous présentons maintenant les résultats du calcul dans le formalisme de la matrice densité pour un spin nucléaire quelconque, de façon à pouvoir expliciter simplement les diverses observables.

J. P. Barrat et C. Cohen-Tannoudji [2, 3] ont appliqué ce formalisme au calcul quantique du cycle de pompage optique. Leurs hypothèses de départ sont les suivantes :

a) Caractère incohérent du faisceau d'illumination (il n'a pas de phase définie). Ceci permet de séparer la matrice densité du système atomique en deux sous-matrices complètement disjointes : $\sigma_{\mu\mu'}$ pour l'état fondamental et $\sigma_{F,m;F',m'}$ pour l'état excité. Il n'existe pas d'éléments du type $\sigma_{F,m;\mu}$. Nous conserverons cette hypothèse.

b) La structure hyperfine est grande devant la largeur naturelle de la raie : $a \gg \Gamma$. La largeur de la raie excitatrice Δ est grande devant Γ et devant les structures Zeeman : Le processus d'excitation optique est « instantané » (réf. [3], p. 440).

$$\Delta > \Gamma,\ \omega_e,\ \omega_f.$$

Il n'est pas fait d'hypothèses sur la grandeur relative de Δ par rapport à a, mais le calcul est en fait développé dans les conditions où $\Delta < a$. Dans ce cas, on trouve qu'il n'existe pas d'éléments non diagonaux de la matrice densité, du type $\sigma_{F,m;F',m'}$ avec F et F' différents. Si, au contraire, Δ est de l'ordre de a ou grand devant a (« broad line excitation » sur l'ensemble de la structure hyperfine), ces éléments non diagonaux sont créés instantanément lors de l'absorption optique. Ils sont modulés au cours du temps à la fréquence $\omega_F - \omega_{F'} \sim a$. La condition $a \gg \Gamma$ fait alors que, par le processus décrit dans la première partie, *ils ne survivent pas à l'évolution* propre de l'état excité, si bien qu'ils ne jouent aucun rôle dans le cycle de pompage optique.

Le résultat des hypothèses de Barrat et Cohen-Tannoudji est donc le suivant : Si $a \gg \Gamma$, on peut ignorer totalement les éléments du type $\sigma_{F,m;F'm'}$ avec $F \neq F'$. La matrice densité de l'état excité se résout en sous-matrices relatives aux divers sous-niveaux hyperfins. C'est ici que le calcul actuel diffère de celui de la référence 3. Nous supposons toujours que $\Delta \gg \Gamma$ et $\Delta \gg \omega_e$, ω_f (le processus d'absorption est « instantané » et l'excitation est du type « broad line » sur la structure Zeeman) mais nous ne supposons plus que $a \gg \Gamma$. Il s'ensuit que, dans notre cas, $\Delta \gg a$. L'excitation est « broad line » sur l'ensemble de la structure hyperfine. Les termes $\sigma_{F,m;F',m'}$ existent donc comme précédemment à l'absorption, mais comme a peut être de l'ordre de Γ ou plus petit, ils survivent à l'évolution propre de l'état excité et interviennent par suite dans l'évolution des populations et des cohérences. Ce sont ces termes dont nous signalerons plus particulièrement l'existence et les manifestations. Ce sont eux qui sont à l'origine de la plus grande partie des différences entre nos résultats et ceux de Cohen-Tannoudji.

Cependant, une deuxième cause de différences existe. Comme, dans notre cas, ω_e peut être grand devant a, il est nécessaire de remplacer, dans les probabilités de transition optique, les coefficients de Clebsch-Gordan par les éléments de matrice du dipôle électrique analogues à ceux donnés plus haut (tableau 1) pour une valeur quelconque du champ.

Il résulte des faits précédents un caractère dissymétrique (que nous avons déjà signalé) des pompages en σ^+ et en σ^-.

Comme dans la référence 3, nous nous plaçons désormais en représentation F, m_F.

Les équations d'évolution de la matrice densité sont obtenues, ici encore, en considérant trois processus distincts :

$$\frac{d\sigma}{dt} = \frac{d^1\sigma}{dt} + \frac{d^2\sigma}{dt} + \frac{d^3\sigma}{dt}$$

1) $\frac{d^1}{dt}$ décrit le processus d'absorption d'un photon (en « broad line excitation »).

2) $\frac{d^2}{dt}$ décrit le processus d'émission spontanée.

3) $\frac{d^3}{dt}$ décrit l'évolution propre de l'atome,

a) dans l'état excité sous l'effet du Hamiltonien $\mathcal{H}_e$ (éq. 2).

b) dans l'état fondamental sous l'effet de $\mathcal{H}_f = \gamma I H$.

Nous écrirons donc les équations d'évolution de la matrice densité

$$\begin{cases} \dfrac{d\sigma_{\mu\mu'}}{dt} = \dfrac{d^1}{dt}\sigma_{\mu\mu'} + \dfrac{d^2}{dt}\sigma_{\mu\mu'} - i[\mathcal{H}_f, \sigma]_{\mu\mu'} \\ \dfrac{d\sigma_{F,m;F'm'}}{dt} = \dfrac{d^1}{dt}\sigma_{F,m;F',m'} \\ \qquad + \dfrac{d^2}{dt}\sigma_{F,m;F',m'} - i[\mathcal{H}_e, \sigma]_{F,m;F',m'}. \end{cases}$$

Les calculs suivent pas à pas ceux de la référence 3. Nous nous contentons de donner les résultats, en séparant les termes déjà trouvés et interprétés par Cohen-Tannoudji des termes nouveaux en $\sigma_{Fm,;F',m'}$ avec $F \neq F'$ dont nous donnons l'interprétation et les conséquences.

1. Étude du processus d'absorption (lumière de polarisation e_{λ_0}). — On aboutit aux équations suivantes

$$\begin{cases} \dfrac{d^1\sigma_{\mu\mu'}}{dt} = -\dfrac{1}{T_P}\sigma_{\mu\mu'} & (5a) \\ \dfrac{d^1}{dt}\sigma_{F,m;F',m'} = \dfrac{1}{T_P} \\ \qquad \sum_{\mu,\mu'} \langle F, m|e_{\lambda_0} D|\mu\rangle \langle \mu'|e_{\lambda_0} D|F',m'\rangle \sigma_{\mu\mu'}. & (5b) \end{cases}$$

On trouve pour la quantité L_A de lumière absorbée par unité de temps

$$L_A = 1/T_P. \qquad (5c)$$

La valeur de $1/T_P$ est donnée dans la référence 3. Elle est proportionnelle à l'intensité lumineuse. T_P apparaît comme la durée de vie de l'état fondamental. Il s'interprète comme le temps moyen séparant deux absorptions successives de photons de pompage par le même atome.

(Les équations précédentes ont une structure plus simple que celles données dans le texte de la référence 3. Cela tient au fait (signalé par Cohen-Tannoudji), que dans le cas où $\Delta \gg a$, la matrice $A_{\mu\mu'}$ est la matrice unité.)

Il n'y a pas ici de modulation de la lumière absorbée.

L'expression 5b est l'analogue de celle de Cohen-Tannoudji, mais les éléments de matrice de $e_{\lambda_0} D$ doivent être pris pour la valeur actuelle du champ.

Les termes pour lesquels F, $m \neq F'$, m' traduisent la possibilité d'introduire de la cohérence dans l'état excité par excitation optique.

Il est clair que cela est possible même en l'absence de cohérence $\sigma_{\mu\mu'}$ dans l'état fondamental (c'est-à-dire si $\sigma_{\mu\mu'} = 0$ si $\mu \neq \mu'$) : Il suffit que les éléments de matrice de $e_{\lambda_0} . D$ existent simultanément vers deux sous-niveaux excités différents $|F, m>$ et $|F', m'>$.

Si $F = F'$, m doit être différent de m'. Ceci n'est possible que si l'excitation optique se fait en polarisation « cohérente », c'est-à-dire ni π, ni σ^+, ni σ^- *pure*. C'est le cas de l'effet Hanle [6]. Cette cohérence ne survit à l'évolution propre de l'état excité que pour des séparations Zeeman de l'ordre de Γ.

Si $F \neq F'$, apparaissent des termes nouveaux : On peut avoir $m \neq m'$. Ceci exige encore une excitation cohérente. Cette cohérence ne demeure après l'évolution propre que si la distance des niveaux est de l'ordre de Γ, c'est-à-dire près d'un croisement de niveaux [7].

Si au contraire $m = m'$, on peut obtenir la cohérence $\sigma_{F,m;F',m}$ avec des polarisations π, σ^+ ou σ^- pures. Il s'agit de niveaux de même m appartenant à des niveaux hyperfins différents. Ces niveaux ne se coupent jamais, ils se repoussent du fait de la partie non diagonale $I_+ J_- + I_- J_+$ du Hamiltonien (2). Il s'agit d'un phénomène d' « anti-crossing » [8]. S'ils passent l'un de l'autre, à une distance de l'ordre de Γ, la cohérence $\sigma_{F,m;F',m}$ ne se moyenne pas à zéro au cours de la durée de vie et affecte le cycle de pompage. C'est exactement la situation que nous analysons dans le présent article.

2. Étude de l'émission spontanée. — On aboutit aux équations suivantes :

$$\begin{cases} \dfrac{d^2}{dt}\sigma_{F,m;F',m'} = -\Gamma'\sigma_{F,m;F',m'} & (6a) \\ \dfrac{d^2}{dt}\sigma_{\mu\mu'} = \Gamma' \sum_{\substack{F,m;F',m' \\ m-m'=\mu-\mu'}} (F, m\,;\, m-\mu, \mu) \\ \qquad (F', m'\,;\, m'-\mu', \mu')\,\sigma_{F,m;F',m'}. & (6b) \end{cases}$$

L'expression de la lumière de fluorescence émise par unité de temps avec la polarisation e_λ est

$$L_F(e_\lambda) = \frac{3\Gamma}{8\pi} \sum_{F,m;F',m'} A_{F,m;F',m'}\,\sigma_{F',m';F,m} \qquad (6c)$$

$(F, m\,;\, m-\mu, \mu)$ est un coefficient de recouplage défini par l'équation

$$\langle F, m| = \sum_{m_I m_J} (F, m\,;\, m_J\, m_I) \langle m_J\, m_I|$$

pour lequel $m_I = \mu$ et $m_J = m - \mu$.

On a alors

$$< \mu|e_\lambda D|F, m > = < \mu = 0|e_\lambda D|m_J = m - \mu >_{I=0} (F, m ; m - \mu, \mu).$$

Les coefficients $(F, m ; m - \mu, \mu)$ sont en champ faible des coefficients de Clebsch-Gordan. En champ quelconque, ils sont donnés, dans le cas de $I = 1/2$ et $J = 1$, par le tableau 1. Ils sont toujours réels.

Les coefficients $A_{F,m;F',m'}$ ont pour valeur

$$A_{F,m;F',m'} = \sum_{\mu} < F, m|e_\lambda D|\mu > < \mu|e_\lambda D|F'm' >,$$

Ces expressions sont les exactes analogues de celles de Cohen-Tannoudji, avec les seuls termes nouveaux $F \neq F'$. L'équation (6*c*) permet de décrire le *diagramme spatial* de rayonnement et la *modulation* dans le temps de la lumière de résonance optique. Une telle modulation peut se déduire de la cohérence $\sigma_{F,m;F',m'}$ qui est présente dans l'état excité.

a) Cette cohérence peut être introduite dans l'état excité par *un champ de radiofréquence dans une expérience de double résonance.* Il se produit une modulation aux fréquences $\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}$ à la condition que le coefficient $A_{F,m;F',m'}$ soit différent de zéro.

Si $F = F'$, il faut que m soit différent de m' et qu'il existe simultanément deux éléments de matrice non nuls de $e_\lambda D$ entre μ et m, et μ et m'. Ceci impose que e_λ ne soit ni π, ni σ^+, ni σ^- pure (détection en polarisation cohérente). C'est l'expérience des « battements optiques » de Series [9] à la fréquence $(m - m')\ \omega_e$.

Si, au contraire, $F \neq F'$, les termes nouveaux indiquent la possibilité d'une modulation de la lumière de fluorescence à la fréquence *hyperfine* $\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}$ et cette modulation peut être détectée en polarisations π, σ^+ ou σ^- pures.

b) La cohérence $\sigma_{F,m;F',m'}$ peut être introduite également dans l'état excité par excitation optique. Nous reviendrons sur certains aspects de cette question dans le paragraphe suivant.

3. Évolution globale de l'état excité. — Le calcul correspond à la situation suivante. On part d'un état fondamental possédant (ou non) une cohérence $\sigma_{\mu\mu'}$ produite par un champ de radiofréquence. L'absorption optique produit instantanément une cohérence dans l'état excité (eq. (5*b*)) Pendant la durée de vie de l'état excité, le système subit son évolution propre sous l'influence du Hamiltonien Zeeman et hyperfin (eq. (1)). A la fin de ce processus, une certaine cohérence $\sigma_{F,m;F',m'}$ demeure. On trouve globalement l'expression suivante :

$$\sigma_{F,m;F',m'}(t) = \frac{1}{T_P} \sum_{\mu\mu'} \frac{< F, m|e_{\lambda_0} D|\mu > < \mu'|e_{\lambda_0} D|F', m' >}{\Gamma + i[(\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}) - (\mu - \mu')\ \omega_t]} \sigma_{\mu\mu'}(t). \quad (7)$$

Cette expression généralise celle de Cohen-Tannoudji. Le dénominateur indique le degré de cohérence qui survit à l'évolution propre.

En combinant (7) et (6*c*), on obtient, dans le cas actuel, l'intensité de la fluorescence avec l'état de polarisation e_λ.

On voit sur cette expression que L_F présente toujours une composante *continue liée aux populations* $\sigma_{\mu\mu}$. Cette composante permet de calculer le taux de polarisation de la lumière de résonance émise à la suite de l'excitation e_{λ_0}.

Par ailleurs L_F *est modulée aux fréquences* de $\sigma_{\mu\mu'}$, soit $(\mu - \mu')\ \omega_t$, *caractéristiques de l'état fondamental.*

A ce stade, il est important de remarquer que les éléments de matrice de $e_{\lambda_0} D$ dans (7) et de $e_\lambda D$ dans (6*c*) doivent être pris à la *valeur actuelle du champ.* Une distinction doit être faite entre les cas suivants :

a) *Effet Hanle et croisement de niveaux* : Les éléments de matrice précédents ne varient pas de façon appréciable dans un domaine de largeur Γ autour de la valeur correspondante du champ.

Il est clair dans ce cas que l'amplitude de la composante continue de L_F $(\mu = \mu')$ présente un caractère résonnant lorsque

$$\omega_{F,m} = \omega_{F',m'}.$$

C'est sur ce signal statique que l'effet Hanle et les croisements de niveaux ont tout d'abord été observés.

L'amplitude des *composantes modulées* de L_F présente également un caractère résonnant dont le maximum est obtenu en annulant la partie imaginaire du dénominateur correspondant de la formule (7). Dans l'effet Hanle, ceci se passe au voisinage du champ nul, l'effet est centré pour $H = 0$, lorsque

$$\omega_e = \omega_t = 0.$$

Il a été décrit par Cohen-Tannoudji.

On voit que des modulations analogues doivent apparaître à un croisement de niveaux $(F \neq F', m \neq m')$; mais si le croisement se produit à une valeur du champ pour laquelle $(\mu - \mu')\ \omega_t$ est supérieur ou égal à Γ, le maximum de la modulation *ne se produit pas* à la position du croisement de niveaux (point où $\omega_{F,m} = \omega_{F'm'}$), mais au point

$$\omega_{F,m} - \omega_{F',m'} = (\mu - \mu')\ \omega_t.$$

La position du maximum change avec $\mu - \mu'$, c'est-à-dire avec la fréquence de la modulation observée.

La formule (7) montre que les modulations précédentes sont en relation de phase avec $\sigma_{\mu\mu'}$, donc avec le champ de radiofréquence qui est à l'origine de cette cohérence.

Les angles de phase (par rapport à $\sigma_{\mu\mu'}$) de toutes les cohérences $\sigma_{F,m;F,m'}$ s'annulent simultanément en champ nul (effet Hanle) et changent de signe

autour de ce point. Il en est de même au voisinage d'un croisement de niveaux (lorsque

$$\omega_{F,m} - \omega_{F',m'} = (\mu - \mu')\,\omega_t)$$

pour toutes les composantes de la modulation $(\mu - \mu')\,\omega_t$.

D'autre part, si la structure hyperfine de l'état excité est telle que

$$\omega_{F,m} - \omega_{F',m'} \approx \Gamma$$

pour $F \neq F'$, en champ faible, il est possible d'observer des composantes de la modulation de L_F à la fréquence $(\mu - \mu')\,\omega_t$, liées à des termes $\sigma_{F,mF',m'}$. L'angle de phase de ces modulations ne tend pas vers zéro en champ nul mais vers Arc tg $(\omega_F - \omega_{F'})/\Gamma$, $\omega_F - \omega_{F'}$ étant l'écart hyperfin en champ nul.

Par ailleurs, suivant la polarisation e_{λ_0} il est possible d'exciter les cohérences $\sigma_{F,m;F',m'}$ ou $\sigma_{F',m';F,m''}$. Les phases des modulations correspondantes en champ nul sont alors opposées l'une à l'autre ($\omega_F - \omega_{F'}$ est changé en $\omega_{F'} - \omega_F$). Ceci n'est évidemment pas possible dans le cas de l'effet Hanle où les phases tendent vers zéro. Ce fait permettra de caractériser une situation pour laquelle l'écart hyperfin est de l'ordre de Γ. Nous y reviendrons dans le cas particulier où $I = 1/2$.

b) *Anticroisements* : Le phénomène, comme nous l'avons vu, se présente lorsque deux ou plusieurs niveaux de même m, au lieu de se croiser, se repoussent sous l'influence d'une perturbation hyperfine possédant des éléments non diagonaux ($I_+ J_- + I_- J_+$ dans le cas d'une structure hyperfine ordinaire). Loin d'un tel point, les états d'énergie sont pratiquement des états purs $|m_I\, m_J>$. Au point d' « anticrossing » la partie non diagonale de la perturbation couple fortement ces différents états entre eux, pourvu qu'ils aient même valeur de $m = m_I + m_J$. On conçoit alors que les éléments de matrice de $e_{\lambda_0} D$ et $e_\lambda D$ qui ne font intervenir que m_J subissent des variations importantes pour cette valeur du champ. Ce sont ces variations qui produisent sur la composante statique de L_F les signaux d' « anticrossing » tels qu'ils sont observés.

Soulignons à ce stade qu'un tel signal est obtenu lorsque les deux niveaux intéressés se repoussent à une distance nettement supérieure à leur largeu naturelle. Ce signal provient uniquement des *éléments diagonaux* $\sigma_{Fm;Fm}$,

Si par surcroît, l' « anticrossing » étudié est tel que la distance énergétique entre les différents niveaux de même m intéressés par le phénomène, reste de l'ordre de grandeur Γ, des termes supplémentaires de cohérence peuvent apparaître dans l'expression de la composante statique de L_F, qui présentent un maximum lorsque $\omega_{F,m} - \omega_{F'm}$ présente un minimum inférieur ou de l'ordre de Γ. Le calcul du signal d' « anticrossing » se complique alors un peu. Nous reviendrons sur ce point ultérieurement. Notons cependant que la quantité p de la première partie est un signal d'anticrossing typique, pour lequel il est tenu compte de la possibilité $\omega_{Fm} - \omega_{F'm} \sim \Gamma$.

Signalons enfin la possibilité, *en excitation cohérente*, de créer dans l'état excité des termes $\sigma_{F,m;F,m}$ et $\sigma_{F,m;F',m}$, modulés à la fréquence de l'état fondamental. Ces termes ne survivent à l'évolution propre de l'état excité que si

$$\Gamma > (\mu - \mu')\,\omega_t$$

pour les premiers (termes étudiés par Cohen-Tannoudji dans la référence 3) et

$$|\omega_{Fm} - \omega_{F'm} - (\mu - \mu')\,\omega_t| < \Gamma$$

pour les seconds. Il est alors possible d'observer sur la lumière de fluorescence, en *détection incohérente*, une modulation à la fréquence $(\mu - \mu')\,\omega_t$. L'amplitude de cette modulation présentera un maximum résonnant au voisinage du point d' « anticrossing ». Ici encore, ce signal d'anticrossing sur *la modulation* de L_F est lié, en ce qui concerne $\sigma_{F,m;Fm}$ aux variations des éléments de matrice de $e_{\lambda_0} D$ et $e_\lambda D$ avec H. La présence des termes non diagonaux $\sigma_{F,m;F',m}$ modulés eux aussi à la fréquence $(\mu - \mu')\,\omega_t$, viendra diminuer le signal précédent lorsque

$$|\omega_{F,m} - \omega_{F'm} - (\mu - \mu')\,\omega_t| < \Gamma.$$

En particulier, lorsque tous les $\omega_{F,m} - \omega_{F'm}$ seront nuls, ces derniers termes annuleront exactement les termes précédents. Il en est de même du signal statique d' « anticrossing » qui disparaît complètement lorsque tous les $\omega_{F,m} - \omega_{F'm}$ sont nuls. Nous reviendrons ultérieurement sur ce point.

Pour conclure cette étude sur la fluorescence, remarquons que les conditions d'observation de l'effet Hanle, ou des croisements de niveaux nécessitent l'emploi d'une détection en polarisation « cohérente » (e_λ n'étant ni σ^+, ni σ^-, ni π pure). Les anticroisements, au contraire, apparaissent aussi sur les polarisations « incohérentes » (π, σ^+ ou σ^- pure).

4. Évolution globale de l'état fondamental. — On aboutit à l'expression

$$\frac{d\sigma_{\mu\mu'}}{dt} = -\frac{1}{T_P}\sigma_{\mu\mu'} + \frac{\Gamma}{T_P} \sum_{\substack{\mu''\mu''' \\ \mu''-\mu'''=\mu-\mu'}} \left[\sigma_{\mu''\mu'''} \sum_{\substack{F,m;F'm' \\ m-m'=\mu-\mu'}} \left(\frac{<F,\, m|e_{\lambda_0} D|\mu''><\mu'''|e_{\lambda_0} D|F',\, m'>\,(F,\, m\,;\, m-\mu,\, \mu)\;(F',\, m'\,;\, m'-\mu',\, \mu')}{\Gamma + i[(\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}) - (\mu - \mu')\,\omega_t]}\right)\right]$$

$$- i(\mu - \mu')\,\omega_t\,\sigma_{\mu\mu'}. \qquad (8)$$

L'expression de droite comprend trois termes. Le premier correspond au départ de cohérence provoquée par l'absorption optique. Le second donne la proportion de cohérence qui retourne à l'état fondamental par émission spontanée, après évolution propre dans l'état excité. C'est ce terme qui est responsable de la « circulation de cohérence » le long du cycle de résonance optique et de la production d'une orientation par pompage optique. Le troisième terme décrit l'évolution propre dans l'état fondamental.

La restriction $\mu'' - \mu''' = \mu - \mu'$ est imposée par l'approximation séculaire qui suppose réalisée la condition $\omega_t T_P \gg 1$. Le calcul précédent n'est donc pas valable dans le cas des champs très faibles où $\omega_t T_P < 1$.

La condition $m - m' = \mu - \mu'$ s'introduit lorsqu'on moyenne le processus de retombée sur toutes les polarisations e_λ. Elle est une conséquence de l'isotropie de l'émission spontanée.

Évolution des cohérences : $\mu \neq \mu'$. L'équation (8) montre que les cohérences ne sont couplées qu'aux cohérences. Les effets nouveaux qui se manifestent à ce stade sont ceux liés aux éléments F, m ; F', m' dans le terme de droite (éq. (8)), avec $F \neq F'$. Ces effets nouveaux sont au nombre de deux. Ils sont de même *nature* que ceux décrits par Cohen-Tannoudji mais ils en modifient la *grandeur*.

On voit, sur l'équation (8), que le terme de « circulation de cohérence » comprend une partie réelle et une partie imaginaire. Si l'on considère le terme en $\sigma_{\mu\mu'}$ la partie réelle s'ajoute à $-1/T_P$ et la partie imaginaire à $(\mu - \mu')\,\omega_t$.

L'effet des termes en F, F' avec $F \neq F'$ est d'abord un nouveau type de couplage de $\sigma_{\mu\mu'}$ à d'autres cohérences. Il apparaît clairement que la restitution de cohérence décrite par la partie réelle du second terme de (8) est à l'origine d'une modification de la *durée de vie optique T_P de l'état fondamental*. La partie imaginaire apparaît comme un *déplacement de la fréquence de résonance dans l'état fondamental* (déplacement lumineux lié aux transitions réelles). Ces deux effets dépendent de l'intensité lumineuse pompante. Ils ont été décrits et interprétés par Cohen-Tannoudji dans le cas de l'effet Hanle ($\omega_{F,m} - \omega_{F,m'} \sim \Gamma$). Les expressions précédentes généralisent les formules de Cohen-Tannoudji et permettent la description de ces phénomènes *au voisinage d'un croisement de niveaux* ou lorsque *la structure hyperfine est de l'ordre de* Γ. En effet, ces effets ne seront *importants* — et les modifications aux formules de Cohen-Tannoudji ne seront notables — que dans les régions où

$$[(\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}) - (\mu - \mu')\,\omega_t] \sim \Gamma.$$

Ces effets dépendent du champ magnétique par le dénominateur du deuxième terme de (8) et par les éléments de matrice de $e_{\lambda_0} D$ et les coefficients $(F, m\,;\, m - \mu, \mu)$. En particulier, en champ faible, ce déplacement lumineux est nécessairement petit devant $1/T_P$ si $\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}$ (qui est de l'ordre de a) est très petit devant Γ. On s'en convainc facilement en écrivant la partie imaginaire du second terme de (8) $\left(\text{de l'ordre de } \frac{1}{T_P}\,\frac{a}{\Gamma}\right)$. On peut donner une interprétation physique de ce déplacement lié aux transitions réelles et à la cohérence hyperfine. Elle est calquée sur celle de Cohen-Tannoudji :

En l'absence totale de couplage hyperfin, $a \ll \Gamma$, I précesse autour du champ dans l'état excité à la même fréquence que dans l'état fondamental. La fréquence de rotation de I n'est pas affectée par son passage dans l'état excité. Le déplacement est nul. (Nous avons vu par ailleurs, et nous y reviendrons, que, dans ce cas, le pompage optique ne provoque aucune orientation nucléaire.)

Si le couplage hyperfin est fort, on se trouve dans le cas analysé par Cohen-Tannoudji : I et J précessent rapidement autour de F, qui précesse lui-même autour de H. La rotation moyenne de I autour de H est affectée par le passage dans l'état excité et ne se fait pas à la vitesse de l'état fondamental.

Si, enfin, $a \sim \Gamma$, I et J font environ un tour autour de F au cours de la durée de vie τ, et cette rotation de I autour de F se compose, sans se moyenner à zéro, avec la rotation de F autour de H qui peut elle-même être de l'ordre de un tour. La rotation totale de I dans l'état excité est encore très différente de ce qu'elle est dans l'état fondamental et un déplacement lumineux en résulte.

L'image précédente laisse prévoir, dans ce dernier cas, que la rotation totale de I dans l'état excité n'est pas la même suivant les valeurs de m_J dans l'état excité. Ceci indique que le *déplacement n'est pas le même suivant que le pompage se fait en σ^+ ou en σ^-*.

En champ quelconque, ceci résulte clairement de l'équation (8) : les coefficients des $\sigma_{\mu''\mu'''}$ qui interviennent ne sont pas du tout les mêmes pour les deux polarisations, ne serait-ce que parce que les $\omega_{F,m}$ sont différents dans les deux cas. Notons qu'il en est de même, en champ quelconque, pour le terme d'*élargissement optique des niveaux de l'état fondamental*.

Le déplacement décrit par Cohen-Tannoudji dans le cas de l'effet Hanle ($F = F'$) s'annule en champ nul. Les termes de ce déplacement ont, au numérateur, les quantités $\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}$. Si $F = F'$, ceci représente des fréquences Zeeman qui s'annulent pour $H = 0$.

Dans le cas présent, le terme $\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}$ reste de l'ordre de a en champ nul ($F \neq F'$) si bien que *ce déplacement optique* lié aux transitions réelles *n'est pas nul pour $H = 0$*. Ceci correspond à une levée de la dégénérescence du niveau fondamental en champ nul.

Nous vérifierons, dans le cas où $I = 1/2$, qu'en champ nul, le déplacement demeure et qu'il a des signes opposés en σ^+ et en σ^-. Le terme d'élargissement optique, par contre, est le même en σ^+ et en σ^-.

Les phénomènes en champ fort présentent des particularités intéressantes car les niveaux de m_J donné et de m_I différents restent à une distance $am_J(m_I - m'_I)$ qui est de l'ordre de a.

Lorsque

$$am_J(m_I - m'_I) - (\mu - \mu')\,\omega_t$$

est de l'ordre de Γ les effets de circulation de cohérence apparaissent avec les mêmes effets que ceux que nous venons d'analyser. Bien que la règle de sélection $\Delta m_I = 0$, empêche d'obtenir l'orientation nucléaire par pompage optique dans ce cas, et par suite des cohérences dans l'état fondamental, on peut imaginer des expériences où ces phénomènes seraient observables. (Pompage optique par une autre raie de résonance par exemple.)

Évolution des populations. — Elle est donnée par la formule (8) lorsque $\mu = \mu'$

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\sigma_{\mu\mu} = -\frac{1}{T_P}\sigma_{\mu\mu} + \frac{1}{T_P}\sum_{m}\Big[\sigma_{\mu''\mu''}\sum_{F,F'}\Big(\langle \mu''|e_{\lambda_0} D|F, m\rangle\langle F', m|e_{\lambda_0} D|\mu''\rangle (F, m\,;\, m-\mu, \mu)(F', m\,;\, m-\mu, \mu)\frac{\Gamma}{\Gamma + i(\omega_{F,m} - \omega_{F',m})}\Big)\Big]. \quad (9)$$

Des termes nouveaux apparaissent lorsque $\omega_{F,m} - \omega_{F',m} \sim \Gamma$. Pour mettre en évidence l'influence de ces termes, il convient de modier l'équation (9) :

Rappelons que

$$\langle \mu|e_{\lambda_0} D|F, m\rangle = \langle \mu = 0|e_{\lambda_0} D|m_J = m - \mu\rangle_{I=0}(F, m\,;\, m-\mu, \mu).$$

Les quantités réelles $(F, m\,;\, m-\mu, \mu)$ sont des coefficients de recouplage que l'on peut définir indifféremment par les relations :

$$\langle F, m| = \sum_{\mu}\langle m-\mu, \mu|(F, m\,;\, m-\mu, \mu)$$

ou

$$|m-\mu, \mu\rangle = \sum_{F}|F, m\rangle(F, m\,;\, m-\mu, \mu).$$

Ces équations relient les états $|F, m\rangle$ aux états

$$|m_J\, m_I\rangle = |m-\mu, \mu\rangle.$$

Nous poserons

$$\langle \mu = 0|e_{\lambda_0} D|m_J = m-\mu\rangle_{I=0} \times \langle m_J = m-\mu|e_{\lambda_0} D|\mu = 0\rangle_{I=0} = P_m(e_{\lambda_0})$$

$P_m(e_{\lambda_0})$ est réel, indépendant de F et satisfait à la relation

$$\sum_{m} P_m(e_{\lambda_0}) = 1.$$

La sommation sur F et F' dans l'équation (9) peut alors s'écrire

$$\sum_{F} P_m(e_{\lambda_0})(F, m\,;\, m-\mu'', \mu'')^2(F, m\,;\, m-\mu, \mu)^2 + \sum_{\substack{F,F'\\ F\neq F'}} P_m(e_{\lambda_0})(F, m\,;\, m-\mu'', \mu'')(F', m\,;\, m-\mu'', \mu'')$$

$$(F, m\,;\, m-\mu, \mu)(F', m\,;\, m-\mu, \mu)\frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\omega_{F,m} - \omega_{F',m})^2} = P_m(e_{\lambda_0})\Big[\Big(\sum_{F}(F, m\,;\, m-\mu'', \mu'')(F, m\,;\, m-\mu, \mu)\Big)^2$$

$$- \sum_{F,F'}(F, m\,;\, m-\mu'', \mu'')(F', m\,;\, m-\mu'', \mu'')\,(F, m; m-\mu, \mu)(F', m; m-\mu, \mu)\frac{(\omega_{F,m} - \omega_{F',m})^2}{\Gamma^2 + (\omega_{F,m} - \omega_{F',m})^2}\Big].$$

Or les relations de normalisation et d'orthogonalité des états $|m-\mu, \mu\rangle$ permettent d'écrire

$$\sum_{F}(F, m\,;\, m-\mu'', \mu'')(F, m\,;\, m-\mu, \mu) = \delta_{\mu''\mu}.$$

L'équation (9) devient alors

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\sigma_{\mu\mu} = -\frac{1}{T_P}\sum_{\substack{F,F'\\ \mu'':m}}\Big[\langle \mu''|e_{\lambda_0} D|F, m\rangle\langle F'm|e_{\lambda_0} D|\mu''\rangle (F, m\,;\, m-\mu, \mu)(F', m\,;\, m-\mu, \mu)\frac{(\omega_{F,m} - \omega_{F',m})^2\,\sigma_{\mu''\mu''}}{\Gamma^2 + (\omega_{F,m} - \omega_{F',m})^2}\Big]. \quad (10)$$

Cette formule met en évidence, en champ faible, l'influence des rapports $\omega_{F,m} - \omega_{F'm}/\Gamma$ sur l'efficacité du processus de pompage optique. Ces rapports sont de l'ordre de a/Γ. Si ce dernier rapport est très faible, $\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\sigma_{\mu\mu} = 0$, les populations de l'état fondamental sont inaffectées par le cycle de résonance optique. Nous avons déjà eu l'occasion de signaler et de commenter ce point.

La formule (10) donne, par ailleurs, l'efficacité du processus de pompage optique pour toutes les valeurs intermédiaires du rapport a/Γ.

En ce qui concerne la valeur de $\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\sigma_{\mu\mu}$ en fonction du champ magnétique, son évolution est déter-

minée par les variations avec H des quantités $< \mu|e_{\mu_0} D|F, m >$ et $(F, m ; m - \mu, \mu)$. Leurs variations sont caractéristiques, comme nous l'avons déjà signalé, de phénomènes d'anticrossing entre différents niveaux $|F, m >$ de même valeur de m.

Nous reprendrons le commentaire détaillé de la formule (10) ultérieurement sur le cas particulier $I = 1/2$.

Cas d'une résonance magnétique dans l'état fondamental. — Dans toutes les équations écrites jusqu'à présent, les cohérences $\sigma_{F,m;F',m'}$ évoluent à la fréquence propre $\omega_{F,m} - \omega_{F',m'}$ de l'état excité, et les cohérences $\sigma_{\mu\mu'}$ à la fréquence propre $(\mu - \mu')\omega_t$ de l'état fondamental. Toutes ces équations sont valables en l'absence de radiofréquence. Elles correspondent à un schéma d'expériences dans lequel les cohérences étant introduites à l'état initial (sans que nous ayons précisé la manière concrète de préparer ainsi le système), on étudie son évolution sous l'effet du seul cycle de pompage.

En présence de radiofréquence à la fréquence ω, un nouveau terme H_{RF} doit être ajouté au Hamiltonien. On montre [3] qu'en passant dans le référentiel tournant à la vitesse angulaire ω, l'ensemble des équations d'évolution de l'état fondamental reste valable. Il suffit lorsque $\omega \simeq \omega_t$ d'y remplacer ω_t par ω. Les cohérences $\sigma_{\mu\mu'}$, évoluent à la fréquence de vibration forcée $(\mu - \mu')\omega$. Il en est de même des modulations de la lumière de fluorescence qui en découlent.

III. Étude du cas particulier où $I = 1/2$. — Nous explicitons maintenant les formules générales précédentes dans le cas particulier d'un spin nucléaire $I = 1/2$ et d'un niveau $J = 1$.

La figure 3 précise les notations utilisées : a_1, a_2, b_1, b_2 et c sont des éléments de matrice donnés dans le tableau 1. Ce tableau est également celui des coefficients $(F, m ; m - \mu, \mu)$ qui sont égaux aux éléments de matrice correspondants lorsque la polarisation e_{λ_0} est σ^+, σ^- ou π pure.

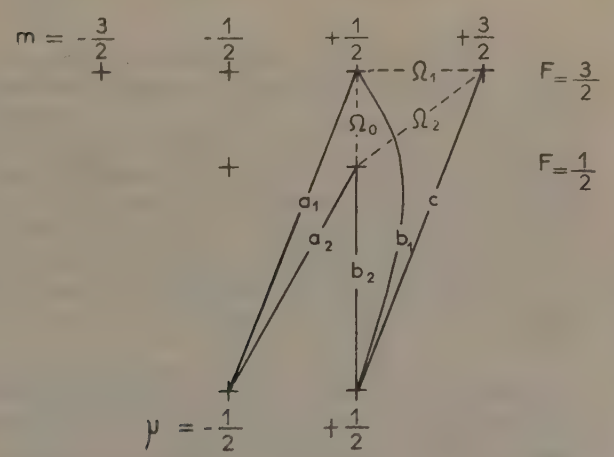

FIG. 3.

Ω_0, Ω_1, et Ω_2 sont les énergies ($\hbar = 1$) séparant en champ quelconque les niveaux indiqués :

$$\begin{cases} \Omega_0 = \omega_{3/2,1/2} - \omega_{1/2,1/2} \\ \Omega_1 = \omega_{3/2,3/2} - \omega_{3/2,1/2} \\ \Omega_2 = \omega_{3/2,3/2} - \omega_{1/2,1/2}. \end{cases}$$

Nous étudions plus particulièrement le cas de l'illumination en σ^+. Nous donnerons cependant en général à titre de comparaison les résultats obtenus en σ^-.

1. ÉVOLUTION DES POPULATIONS DE L'ÉTAT FONDAMENTAL. — La formule (9) donne immédiatement

$$\frac{d}{dt}\sigma_{+\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} = \frac{1}{T_P}\left[a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2 + a_1 a_2 b_1 b_2 \left(\frac{\Gamma}{\Gamma + i\Omega_0} + \frac{\Gamma}{\Gamma - i\Omega_0}\right)\right]\sigma_{-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}}. \quad (11)$$

Les deux premiers termes du second membre sont ceux du pompage optique « *classique* » (tel qu'on l'effectue à partir des probabilités de transition et des populations). Les termes suivants traduisent la possibilité, à partir de l'état $\mu = -1/2$, en illumination σ^+, d'exciter les cohérences hyperfines $\sigma_{3/2,1/2;1/2,1/2}$ et son complexe conjugué $\sigma_{1/2,1/2;3/2,1/2}$.

On obtient ainsi :

$$\frac{d}{dt}\sigma_{+\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} = \frac{1}{T_P}\left[a_1^2 b_1^2 + a_2^2 b_2^2 + 2a_1 b_1 a_2 b_2 \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + \Omega^2}\right]\sigma_{-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}}. \quad (12)$$

On peut modifier cette expression en tenant compte du fait que $a_1 b_1 + a_2 b_2 = 0$. (Cette relation très générale a été démontrée ci-dessus et peut se vérifier facilement dans ce cas particulier à l'aide des valeurs du tableau 1.) On trouve :

$$\frac{d}{dt}\sigma_{+\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} = \frac{1}{T_P} 2a_1^2 b_1^2 \frac{\Omega_0^2}{\Gamma^2 + \Omega_0^2}\sigma_{-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}} \quad (13)$$

ou

$$\frac{d}{dt}\sigma_{+\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} = -\frac{1}{T_P} 2a_1 b_1 a_2 b_2 \frac{\Omega_0^2}{\Gamma^2 + \Omega_0^2}\sigma_{-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}}.$$

Cette dernière formule est l'expression de l'équation générale (10) dans ce cas particulier.

a) Si $\Omega_0 \gg \Gamma$, la structure hyperfine est grande devant la largeur naturelle (en champ nul $\Omega_0 = 3a/2$ et au centre de l'anticrossing $\Omega_0 = a\sqrt{2}$ (*fig.* 2)). On trouve le résultat « classique » que l'on calcule en raisonnant sur les populations et sur les probabilités de transition (à condi-

tion de prendre celles-ci pour la valeur actuelle du champ). Dans ce cas, *les variations d'efficacité du pompage reflètent simplement celles des probabilités de transition.* Il est clair que ces dernières varient avec le champ (tableau 1) et qu'elles ne *restent pas symétriques en* σ^+ *et en* σ^-. Le pompage n'est donc symétrique qu'en champ nul. Il est totalement inefficace en champ fort ($a_2 = b_1 = 0$ pour $x \to \infty$). La zone d'efficacité du pompage s'étend cependant nettement au-delà du point d'anticrossing.

b) $\Omega_0 = 0$. Ceci arrive en champ nul, en l'absence totale de structure hyperfine. Il ne se produit aucune orientation nucléaire. C'est le cas où les termes de retombée annulent exactement l'effet de l'absorption : les photons réémis sont identiques aux photons absorbés. Il est à noter dans ce cas ($a = 0$), que pour une valeur *quelconque* du champ, le paramètre x du tableau 1 est *infini* si bien que b_1 et a_2 sont toujours nuls. En *aucun cas*, il ne se produit d'orientation nucléaire, et ceci reflète une propriété des éléments de matrice du dipôle électrique.

c) $\Omega_0 \sim \Gamma$. On voit alors que l'efficacité du pompage se calcule en multipliant l'efficacité classique (obtenue en *a*) par $\Omega_0^2/(\Gamma^2 + \Omega_0^2)$:

A l'effet des probabilités de transition s'ajoute celui dû à la proximité des niveaux. Pour obtenir les variations de l'efficacité du pompage avec le champ, il faut expliciter a_1^2 et b_1^2, à partir des formules du tableau 1. On trouve alors :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\sigma_{+\frac{1}{2}-\frac{1}{2}} = \frac{1}{T_P}\frac{a^2}{\Gamma^2 + 2a^2 + \delta^2}\sigma_{-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}} = \frac{p}{T_P}\sigma_{-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}} \tag{13}$$

$$\delta = g_J \mu_B H - \frac{a}{2}.$$

C'est la formule obtenue par la théorie simplifiée du chapitre I.

Elle englobe toutes les causes de variation de p : éléments de matrice et termes en $\Omega_0^2/(\Gamma^2 + \Omega_0^2)$. Elle implique la dissymétrie souvent signalée en σ^+ et σ^- pour une valeur non nulle de champ. En champ fort, p est *nul* ($\delta \to \infty$). Dans tous les cas, p passe par un *maximum* pour $\delta = 0$, c'est-à-dire au point d'anticrossing (en σ^-, p est toujours décroissant). Or le facteur $\Omega_0^2/(\Gamma^2 + \Omega_0^2)$ passe par un *minimum* à l'anticrossing. Ainsi l'effet global est la superposition de deux effets, et c'est, dans tous les cas, celui des probabilités de transition qui l'emporte.

La vérification de la formule donnant p demande quelques précautions. Les populations limites atteintes sont définies par la compétition entre le pompage optique (équation 13)) et la relaxation T_1. Une observable dépendant du taux d'orientation sera en général une fonction complexe de p et de T_1.

Comme nous l'avons vu au chapitre I, le taux de polarisation de la lumière de fluorescence émise après excitation σ^+ vaut :

$$\rho = \frac{I_{\sigma^+} - I_\pi}{I_{\sigma^+} + I_\pi} = 1 - 2p\,\sigma_{-\frac{1}{2}-\frac{1}{2}}$$

ρ reflète les variations de p si $\sigma_{-1/2-1/2}$ ne dépend pas lui-même de p.

On réalise cette situation en opérant de manière que $\sigma_{-1/2-1/2} = 1/2$, soit avec une intensité pompante faible ou une relaxation thermique rapide, soit encore en présence d'une résonance magnétique dans l'état fondamental à saturation.

Il est clair que le taux de polarisation ne sera pas le même en σ^+ et en σ^-. Nous avons vu en effet que en σ^-, il convenait de remplacer δ par

$$\delta' = -g_J \mu_B H - \frac{a}{2}.$$

Les variations de p avec Γ/a et Δ/a ont été discutées plus haut.

On a reproduit sur la figure 4, ces variations en fonction de H pour les excitations σ^+ et σ^-.

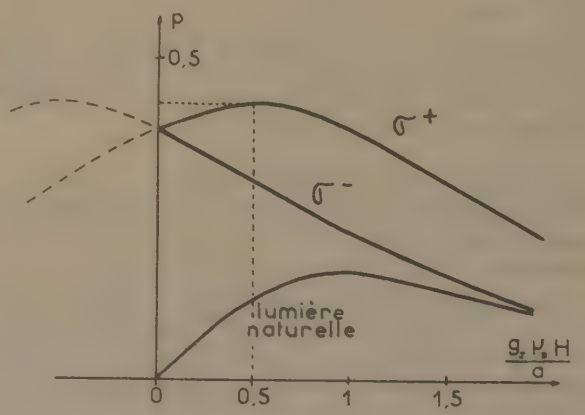

FIG. 4.

On a aussi reproduit l'efficacité du pompage en lumière naturelle. La possibilité d'obtenir ainsi une orientation nucléaire dans ce cas ($I = 1/2$) est assez remarquable et a été observée expérimentalement sur les isotopes 111 et 113 du cadmium.

La figure 4 est faite dans l'hypothèse où $a > 0$. Pour $a < 0$, les courbes σ^+ et σ^- seraient inversées : *le fait que le maximum d'efficacité du pompage se produit en lumière* σ^+ *permet d'affirmer que* $a > 0$ *pour le niveau* $5\,^1P_1$ *de* ^{111}Cd *et* ^{113}Cd.

2. CIRCULATION DE COHÉRENCE. — Il n'existe qu'un terme de cohérence $\sigma_{-1/2+1/2}$ (et son complexe conjugué) dans le cas actuel.

Son équation d'évolution se déduit de l'équa-

tion (8). Les seuls termes $\sigma_{F,m;F',m'}$ qui interviennent sont ceux pour lesquels

$$m - m' = \mu - \mu' = 1.$$

En pompage en σ^+, ce sont les termes $\sigma_{3/2,1/2;3/2,3/2}$ et $\sigma_{1/2,1/2;3/2,3/2}$ (soit les différences d'énergie Ω_1 et Ω_2 de la figure 3).

On trouve dans ce cas (σ^+) :

$$\frac{d}{dt}\sigma_{-\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} = \left[-\frac{1}{T_P} + \frac{\Gamma}{T_P}\frac{a_1^2 c^2}{\Gamma - i(\Omega_1 - \omega_f)} + \frac{\Gamma}{T_P}\frac{a_2^2 c^2}{\Gamma - i(\Omega_2 - \omega_f)} + i\omega_f\right]\sigma_{-\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} \quad (14)$$

Soit en séparant la partie réelle et la partie imaginaire du crochet de droite :

$$\frac{d}{dt}\sigma_{-\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} = \left[-\frac{1}{T'_P} + i\omega'_f\right]\sigma_{-\frac{1}{2}+\frac{1}{2}}$$

$$\begin{cases} \dfrac{1}{T'_P} = \dfrac{1}{T_P}\left[1 - \dfrac{a_1^2 c^2}{\Gamma^2 + (\Omega_1 - \omega_f)^2}\dfrac{\Gamma^2}{\Gamma^2} - \dfrac{a_2^2 c^2}{\Gamma^2 + (\Omega_2 - \omega_f)^2}\dfrac{\Gamma^2}{\Gamma^2}\right] & (14.1) \\ \omega'_f = \omega_f + \dfrac{a_1^2 c^2}{T_P}\dfrac{\Gamma(\Omega_1 - \omega_f)}{\Gamma^2 + (\Omega_1 - \omega_f)^2} + \dfrac{a_2^2 c^2}{T_P}\dfrac{\Gamma(\Omega_2 - \omega_f)}{\Gamma^2 + (\Omega_2 - \omega_f)^2}. & (14.2) \end{cases}$$

L'équation (14, 1) donne la constante d'amortissement *optique* T'_P de la cohérence, et (14, 2) le déplacement lumineux associé aux transitions réelles.

Les expressions en champ faible de Ω_0, Ω_1 et Ω_2 sont les suivantes :

$$\begin{cases} \Omega_0 = 3\dfrac{a}{2} - \dfrac{1}{3} g_J \mu_B H \\ \Omega_1 = \dfrac{2}{3} g_J \mu_B H \\ \Omega_2 = 3\dfrac{a}{2} + \dfrac{1}{3} g_J \mu_B H. \end{cases}$$

On voit par ailleurs que, en champ fort, Ω_1 tend vers a alors que Ω_2 croît indéfiniment avec le champ.

Les *seuls termes nouveaux* par rapport aux expressions de Cohen-Tannoudji sont les *termes en* Ω_2. Les corrections aux valeurs de Cohen-Tannoudji sont donc très faibles, sauf si $\Omega_2 \sim \Gamma$ c'est-à-dire si $a \sim \Gamma$. En tout état de cause, ces termes seront négligeables en champ fort ($\Omega_2 \gg \Gamma$).

Par contre, si $a \sim \Gamma$, les termes en Ω_1 restent, en σ^+, de l'ordre de Γ quelle que soit la valeur du champ (Ω_1 tend vers a en champ fort).

(14, 1) indique que la possibilité supplémentaire de retour de la cohérence hertzienne par l'intermédiaire de la cohérence hyperfine (Ω_2) contribue à diminuer la relaxation transversale d'origine lumineuse (l'effet s'ajoute donc à celui de la cohérence Zeeman (Ω_1) décrit par Cohen-Tannoudji).

(14, 2) indique de même l'existence de déplacements lumineux supplémentaires.

Les quantités en Ω_2 ont cependant un comportement très différent des mêmes quantités liées à Ω_1. On peut en effet calculer de façon très analogue l'équation d'évolution de $\sigma_{-1/2+1/2}$ sous l'effet d'une irradiation σ^-. On trouve une expression analogue à (13), mais dans laquelle Ω_1 et Ω_2 sont remplacés en champ faible par :

$$\Omega'_1 = \frac{2}{3} g_J \mu_B H = \Omega_1$$

$$\Omega'_2 = -3\frac{a}{2} + \frac{1}{3} g_J \mu_B H \neq \Omega_2.$$

Lorsque H tend vers 0, Ω_1 et Ω_2 tendent vers zéro, Ω'_2 tend vers $-3a/2$ et Ω_2 vers $+3a/2$.

Par ailleurs, en champ fort, Ω'_1 tend vers l'infini et Ω'_2 vers a. Ainsi même en champ très faible ($g_J \mu_B H \ll a$) où les probabilités de transition sont symétriques en σ^+ et en σ^-, les expressions de T'_P sont identiques en σ^+ et σ^- (mais ne le restent pas en champ plus fort), alors que les expressions du déplacement diffèrent : la cohérence hyperfine augmente le déplacement en σ^+ et le diminue en σ^-. *Ces déplacements ne sont pas nuls et sont de signes opposés en champ nul.* Ce comportement est très différent de celui du déplacement en Ω_1, de Cohen-Tannoudji (qui s'annule en champ nul). Avec les hypothèses de Cohen-Tannoudji ($a \gg \Gamma$), Ω_1 devenait rapidement grand devant Γ. Il n'en est plus de même ici. En champ fort, a_2 tend vers zéro et a_1 tend vers 1. On trouve alors en σ^+.

$$\frac{d}{dt}\sigma_{-\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} = \left[-\frac{1}{T_P}\left(1 - \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + a^2}\right) + i\left(\omega_f + \frac{\Gamma}{T_P}\frac{a}{\Gamma^2 + a^2}\right)\right]\sigma_{-\frac{1}{2}+\frac{1}{2}} \quad (15)$$

On voit ainsi que, contrairement à l'aimantation longitudinale, l'aimantation transversale reste affectée par le cycle de résonance optique quelle que soit la valeur du champ magnétique. Ce fait est susceptible de l'interprétation physique suivante : dans l'état excité de l'atome existe un moment magnétique d'origine électronique. Celui-ci crée, au niveau du noyau, un champ magnétique supplémentaire responsable de la structure hyperfine. Ce champ magnétique interne possède une composante parallèle à H : H_L (qui change de sens suivant que l'illumination s'est faite en σ^+ ou en σ^-) et une composante perpendiculaire à H : H_T.

En champ fort ($H \gg H_I$), seule joue un rôle la composante H_L, qui s'ajoute à H dans l'état excité. La vitesse de la précession de Larmor nucléaire

dans l'état fondamental (γH) est alors différente de celle dans l'état excité $\gamma(H + H_L)$ et si $\gamma H_L \tau$ est de l'ordre de 1 (ce qui signifie que a est de l'ordre de Γ), ceci se traduira par un déplacement lumineux de la fréquence de résonance de l'état fondamental, ainsi que par un affinement de la largeur optique de cette résonance (formule 15).

En champ faible ($H \leqslant H_T$), le rôle de H_T est de créer des transitions entre les niveaux $m_I = +1/2$ et $m_I = -1/2$. Ce sont ces transitions qui sont à l'origine du pompage optique tel que nous l'avons décrit dans le chapitre 1.

3. Modulation de la lumière de fluorescence a la fréquence de résonance dans l'état fondamental. — En combinant les formules (6, C) et (7), on voit que dans l'expression de L_F existent des termes en $\sigma_{-1/2+1/2}$ et $\sigma_{+1/2-1/2}$. Lors d'une expérience de résonance magnétique dans l'état fondamental, ces termes sont modulés avec la pulsation ω du champ de radiofréquence ($\omega \simeq \omega_t$).

L'expression de cette modulation, dans le cas particulier que nous étudions, pour une lumière de fluorescence de polarisation e_λ, est

$$L_F^{(1)} = a_1 c \left\langle \tfrac{3}{2}, \tfrac{3}{2} \middle| e_\lambda D \middle| +\tfrac{1}{2} \right\rangle \left\langle +\tfrac{1}{2} \middle| e_\lambda D \middle| \tfrac{3}{2}, \tfrac{1}{2} \right\rangle$$

$$\frac{\Gamma}{\Gamma - i(\Omega_1 - \omega)} e^{i(\omega t - \frac{\pi}{2})} + C.C,$$

$$+ a_2 c \left\langle \tfrac{3}{2}, \tfrac{3}{2} \middle| e_\lambda D \middle| +\tfrac{1}{2} \right\rangle \left\langle +\tfrac{1}{2} \middle| e_\lambda D \middle| \tfrac{1}{2}, \tfrac{1}{2} \right\rangle$$

$$\frac{\Gamma}{\Gamma - i(\Omega_2 - \omega)} e^{i(\omega t - \frac{\pi}{2})} + C.C.$$

Le premier terme (en Ω_1) et son complexe conjugué sont ceux décrits par Cohen-Tannoudji. Les derniers termes, qui font intervenir la cohérence hyperfine (Ω_2) dans l'état excité, sont au contraire nouveaux.

En prenant par exemple

$$e_\lambda = -\frac{1}{\sqrt{2}} \left(i \frac{e_{\sigma+} + e_{\sigma-}}{\sqrt{2}} + i e_\pi \right),$$

c'est-à-dire une polarisation de la lumière, circulaire droite par rapport à Ox, et en tenant compte de la relation générale $a_1 b_1 + a_2 b_2 = 0$, on trouve que $L_F^{(1)}$ est proportionnelle à

$$\sin(\varphi_1 - \varphi_2) \cos(\omega t - \varphi_1 - \varphi_2)$$

en posant

$$\operatorname{tg} \varphi_1 = (\Omega_1 - \omega)/\Gamma \text{ et } \operatorname{tg} \varphi_2 = (\Omega_2 - \omega)/\Gamma.$$

φ_1 est le déphasage trouvé par Cohen-Tannoudji, φ_2 est un terme nouveau. Ici encore, à l'inverse de φ_1, φ_2 *change de signe*, en champ faible, lorsqu'on passe de σ^+ à σ^- et ne *tend pas vers zéro en champ nul.*

Cohen-Tannoudji avait déterminé φ_1 en comparant la phase de la modulation de *l'absorption* à celle de la fluorescence. Ici, la lumière absorbée n'est pas modulée (« broad line excitation »). En l'absence d'une mesure correcte de la phase du champ de radiofréquence, dans le volume de la cellule, l'observation de φ_1 paraît difficile. Par contre, lorsqu'on passe de l'illumination σ^+ à l'illumination σ^-, la phase de la modulation de la lumière de fluorescence change brusquement de $2\varphi_2$ Cette mesure fournit une indication directe sur le rapport a/Γ *indépendante de l'intensité lumineuse* de pompage (ce qui n'est pas le cas pour le déplacement lumineux étudié ci-dessus). Ce brusque changement de phase a été observé sur ^{111}Cd et fournit une valeur en excellent accord avec la formule $\operatorname{tg} \varphi_2 = (\Omega_2 - \omega)/\Gamma$.

Expériences en cours, en liaison avec l'étude précédente. — Diverses tentatives d'orientation nucléaire de ^{67}Zn par pompage optique ont été faites [10]. Aucune n'ayant abouti, il semble que les raisons de cet échec soient les suivantes : Pour la raie 3 076 Å, la structure hyperfine du niveau $4\,^3P_1$ est certainement suffisante, mais sa très longue durée de vie ($\tau \simeq 10^{-5}$ s) conduit à des probabilités de transition trop faibles, si bien qu'il est difficile d'avoir des intensités pompantes convenables.

La raie 2 138 Å, par contre est très intense ($\tau \approx 10^{-9}$ s), mais la structure hyperfine du niveau $4\,^1P_1$ est certainement très inférieure à sa largeur naturelle : $a/\Gamma \ll 1$ (il s'agit d'un état de singulet dans un atome où le couplage est assez proche du type Russel-Saunders).

Le facteur p est donc très faible dans ce cas, ce qui explique qu'aucune orientation nucléaire n'ait pu être observée, bien que nous ayons disposé d'intensités pompantes tout à fait comparables à celles qui s'étaient révélées suffisantes dans le cas de ^{201}Hg (si l'on suppose en plus, ce qui est probable, que les relaxations de ^{201}Hg et de ^{67}Zn ne sont pas très différentes).

Les isotopes ^{111}Cd et ^{113}Cd, tous deux de spins nucléaires $I = 1/2$ sont actuellement en cours d'étude. Leur orientation nucléaire par pompage optique a été obtenue facilement à l'aide de la raie 2 288 Å allant vers le niveau $5\,^1P_1$

$$(\tau \simeq 1{,}6 \times 10^{-9} \text{ s}, \quad a = 186 \text{ Mc/s}).$$

La vérification détaillée de la présente théorie est en cours sur ces isotopes. Des taux d'orientation nucléaire appréciables ont été obtenus par illumination en σ^+, en σ^- (jusqu'à 30 %) et en *lumière naturelle* (quelques %).

Des courbes très analogues à celles de la figure 4

ont été observées. Les phases de la modulation de la lumière de fluorescence en σ^- et en σ^+ ont pu être étudiées comme nous l'avons expliqué plus haut. Les résultats numériques sont en accord avec les connaissances que nous possédons sur la structure hyperfine et la largeur naturelle du niveau $5\,^1P_1$.

Par contre, la largeur relativement grande (~ 15 c/s) des courbes de résonance optique, ne nous a pas permis encore d'observer de façon certaine les déplacements lumineux prévus par la théorie, et encore moins les lois auxquelles ils obéissent.

Remarque concernant les anticroisements. — Les phénomènes d'anticrossing sont beaucoup plus généraux que ceux décrits ici, qui apparaissent à l'intérieur de la structure hyperfine d'un niveau donné. Ils ont été décrits, et leurs caractères essentiels ont été observés à l'occasion de l'étude de la structure hyperfine d'un croisement entre deux niveaux de structure fine différents [8].

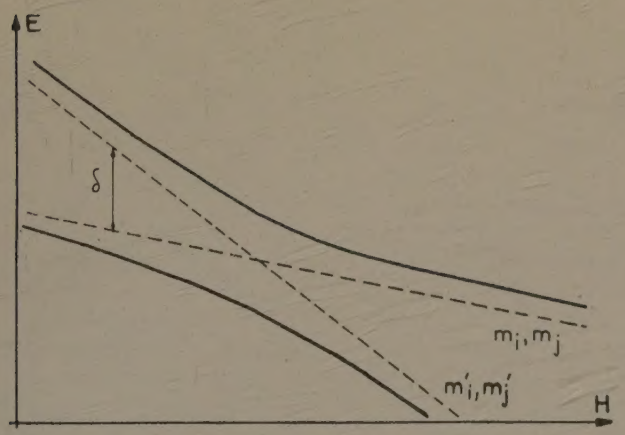

FIG. 5.

Considérons deux sous-niveaux $|m_J>$ et $|m'_J>$ appartenant à deux niveaux de structure fine différents, et que se croisent pour une valeur H_0 du champ magnétique ($m_J \neq m'_J$). Si chacun des deux niveaux de structure fine possède une structure hyperfine, on se trouve pour $H = H_0$ en zone de découplage IJ (effet Back-Goudsmit) : chacun des deux niveaux se décompose en une série de sous-niveaux (m_J, m_I) parallèles entre eux. Il peut alors arriver que deux tels niveaux $|m_J, m_I>$ et $|m'_J, m'_I>$ aient même valeur de $m = m_I + m_J$. On sait alors qu'il existe une perturbation d'origine hyperfine possédant des éléments de matrice non diagonaux entre $|m_J\, m_I>$ et $|m'_J\, m'_I>$. Les deux niveaux dans ce cas, au lieu de se couper, se repoussent (*fig.* 5) tandis que leurs fonctions d'ondes se mélangent. Ce phénomène a été observé sur la lumière de fluorescence : typiquement, si l'excitation peuple sélectivement le niveau $|m_J\, m_I>$, la polarisation de la lumière de fluorescence sera elle aussi caractéristique de l'émission à partir de ce niveau ; sauf au voisinage de l'anticrossing où apparaîtra l'émission à partir du niveau $|m'_J\, m'_I>$.

Ce phénomène sera très marqué si les deux niveaux se repoussent à une distance très supérieure à leur largeur naturelle, mais il sera inobservable si la perturbation hyperfine ne les sépare que d'une quantité très inférieure à cette largeur naturelle (tout se passe alors comme si les deux niveaux m_J et m'_J se croisaient effectivement).

De façon générale, il est clair que ce phénomène est tout à fait analogue au cas que nous venons d'étudier.

Tous les phénomènes décrits ici pourront être observés dans le cadre de l'anticrossing le plus général. En particulier, lorsque le niveau fondamental possède un paramagnétisme purement nucléaire ($J = 0, I \neq 0$), la possibilité de produire, au voisinage de ces points, une orientation nucléaire dans l'état fondamental, apparaît dans le cadre de la théorie.

La polarisation de la lumière de pompage reste à étudier dans chaque cas particulier, mais il est clair que dans la plupart des cas, il sera possible d'utiliser une lumière naturelle. Une telle orientation nucléaire par pompage optique ne pourra être obtenue que dans un domaine étroit de champ magnétique autour d'une valeur pour laquelle l'effet Black-Goudsmit est total (dans le signal d'anticrossing).

Conclusion. — En conclusion, nous avons étendu le domaine de validité du calcul quantique du cycle de pompage optique pour produire l'orientation nucléaire, à des valeurs quelconques du champ magnétique et pour une valeur quelconque du rapport a/Γ.

Des phénomènes nouveaux sont prévus par le calcul, en particulier aux points « d'anticrossing » et aux croisements de niveaux.

Les plus importants d'entre eux sont en cours de vérification expérimentale sur les isotopes impairs du cadmium qui se prêtent particulièrement bien à cette étude.

Les échecs de nos tentatives d'orientation nucléaire de ^{67}Zn ont pu être expliqués.

Enfin, la possibilité de produire une orientation nucléaire par pompage optique (en lumière naturelle ou polarisée) lors d'un phénomène « d'anticrossing » le plus général, est prévu dans le cadre de cette théorie.

Je tiens à remercier MM. J. Brossel et C. Cohen-Tannoudji qui ont grandement participé à l'élaboration de ce travail.

Manuscrit reçu le 17 mars 1964.

BIBLIOGRAPHIE

[1] CAGNAC (B.), *Thèse*, Paris, 1960 ; *Ann. Physique*, 1961, 6, 467.
WALTER (W. T.), Quaterly Progress Report n° 62, Research Laboratory of Electronics M. I. T., 1961, 105 et 108.

[2] BARRAT (J. P.) et COHEN-TANNOUDJI (C.), *J. Physique Rad.*, 1961, 22, 329 et 443.

[3] COHEN-TANNOUDJI (C.), *Thèse*, Paris, 1962 ; *Ann. Physique*, 1962, 7, 423 et 469.

[4] LEHMANN (J. C.) et BROSSEL (J.), *C. R. Acad. Sc.*, 1964, 258, 869.

[5] LURIO (A.) et NOVICK (R.), *Phys. Rev.*, 1964, 134, A 608.

[6] MITCHELL (A. C. G.) et ZEMANSKY (M. W.), Resonance Radiation and Excited Atoms, Cambridge University Press, London, 1934.

[7] COLEGROVE (F. D.), FRANKEN (P. A.), LEVIS (R. R.) et SANDS (R. H.), *Phys. Rev. Let.*, 1959, 3, 420.
FRANKEN (P. A.), *Phys. Rev.*, 1961, 121, 508.

[8] ECK (T. G.), FOLDY (L. L.) et WIEDER (H.), *Phys. Rev. Let.*, 1963, 10, 239.
SERIES (G. W.), *Phys. Rev. Let.*, 1963, 11, 13.

[9] DODD (J.), FOX (W.), SERIES (G. W.) et TAYLOR (M.), *Proc. Phys. Soc.*, 1959, 74, 789.
SERIES (G. W.), The Ann Arbor Conference on Optical Pumping, The University of Michigan, 1959, p. 149.

[10] DUMONT (M.), Thèse 3e cycle, Paris, 1962.
LEHMANN (J. C.), Thèse 3e cycle, Paris, 1963.